

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-100507

(43)Date of publication of application : 05.04.2002

---

(51)Int.Cl.

H01F 1/08

B22F 1/00

B22F 3/00

B22F 3/10

B22F 9/10

C22C 38/00

G01L 3/10

G01P 3/44

G01P 15/105

G01R 33/038

H01F 1/053

H01F 41/02

---

(21)Application number : 2000-  
291692

(71)Applicant : NISSAN MOTOR CO LTD

(22)Date of filing :

26.09.2000

(72)Inventor : WAKI NORIHISA

ONO HIDEAKI

SHIMADA MUNEKATSU

SUGIYAMA TATSUO

---

**(54) REPLACEMENT SPRING MAGNET AND ITS MANUFACTURING  
METHOD**

**(57)Abstract:**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a bulked replacement spring magnet and its manufacturing method, and a motor, a sensor or the like with the replacement spring magnet without damaging magnet characteristics.

**SOLUTION:** The bulked replacement spring magnet has a structure, wherein raw powder is made dense, and boron atom and oxygen atom cohere among grains of the dense raw powder, and comprises a permanent magnet phase and a soft magnetic phase. Magnet material composition formula is  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_y$  wherein  $x=4$  to  $11$ ,  $y=3$  to  $8$  or  $x=7.5$  to  $10.5$ ,  $y=5.5$  to  $7.5$ . The ratio of concentration of boron atom among dense raw powder grains to concentration of boron atom inside raw powder grain (intergranular concentration/intragranular concentration) is at least  $1.2$ . The ratio of concentration of oxygen atom among the dense raw powder grains to concentration of oxygen atom inside raw powder grain (intergranular concentration/ intragranular concentration) is at least  $1.2$ .

---

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

31.07.2002

[Date of sending the examiner's

23.03.2004

decision of rejection]

[Kind of final disposal of application  
other than the examiner's decision of  
rejection or application converted  
registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3739266

[Date of registration] 11.11.2005

[Number of appeal against examiner's decision of rejection] 2004-08352

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection] 22.04.2004

[Date of extinction of right]

**\* NOTICES \***

**JPO and NCIPJ are not responsible for any  
damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

---

## CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] The bulk exchange spring magnet which comes to contain the permanent magnet phase and soft magnetism phase which have the structure which came to carry out eburnation of the raw material powder, and the boron atom and the oxygen atom condensed between the particles of said raw material powder by which eburnation was carried out.

[Claim 2] The bulk exchange spring magnet according to claim 1 which a magnet ingredient empirical formula is  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_y$ , and is characterized by being  $x=4-11$  and  $y=3-8$ .

[Claim 3] The bulk exchange spring magnet according to claim 1 which a magnet ingredient empirical formula is  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_y$ , and is characterized by being  $x=7.5-10.5$  and  $y=5.5-7.5$ .

[Claim 4] The ratio (concentration between particles / interior concentration of a particle) of the concentration of the boron atom between the particles of said raw material powder to the concentration of the boron atom in the interior of the particle of said raw material powder by which eburnation was carried out by which eburnation was carried out or more by 1.2 A bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 1-3 characterized by the ratio (concentration between particles / interior concentration of a particle) of the concentration of the oxygen atom between the particles of said raw material powder to the concentration of the oxygen atom in the interior of the particle of said raw material powder by which eburnation was carried out by which eburnation was carried out being 1.2 or more.

[Claim 5] A bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 1-4 characterized by the thickness of the part which the boron atom and the oxygen atom condensed between the particles of said raw material powder by which eburnation was carried out being 65nm or more.

[Claim 6] A bulk exchange spring magnet given in any 1 term according to claim 1 to 5 characterized by the particle size of said raw material powder being 20-500 micrometers.

[Claim 7] A bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 1-5 characterized by the particle size of said raw material powder being 80-200 micrometers.

[Claim 8] The manufacture approach of a bulk exchange spring magnet given in any 1 term including the phase which compresses raw material powder by pressure 300-1200MPa, the phase which carries out a temperature rise to the

retention temperature of 550-800 degrees C in the condition of having pressurized by said pressure, by 25 degrees C to the programming rate of 5-40 degrees C / min, and the phase of carrying out 0.01-10min maintenance with said retention temperature, and carrying out eburnation of said raw material powder of claims 1-7.

[Claim 9] The manufacture approach of a bulk exchange spring magnet given in any 1 term including the phase which compresses raw material powder by pressure 500-1200MPa, the phase which carries out a temperature rise to the retention temperature of 650-700 degrees C by 25 degrees C to the programming rate of 10-25 degrees C / min where said pressure is pressurized, and the phase which carries out 0.01-3min maintenance with said retention temperature, and sinters said raw material powder of claims 1-7.

[Claim 10] Said raw material powder is the manufacture approach of the bulk exchange spring magnet according to claim 8 or 9 characterized by being the quenching thin band produced by the roll peripheral velocity 10 - 60 m/sec.

[Claim 11] Said raw material powder is the manufacture approach of the bulk exchange spring magnet according to claim 8 or 9 characterized by being the quenching thin band produced by the roll peripheral velocity 15 - 35 m/sec.

[Claim 12] The pressure of the phase which sinters said raw material powder is the manufacture approach of a bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 8-11 characterized by being  $1 \times 10^{-4}$ -9.5Pa.

[Claim 13] The pressure of the phase which sinters said raw material powder is the manufacture approach of a bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 8-11 characterized by being  $2 \times 10^{-4}$ -3Pa.

[Claim 14] The motor which comes to use the bulk exchange spring magnet of a publication for any 1 term of claims 1-7, a field sensor, a rotation sensor, an acceleration sensor, or a torque sensor.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

---

DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the bulk exchange spring magnet whose magnetism of a property improved in more detail about the high power magnet ingredient which can be used suitable for a motor, a field sensor, a rotation sensor, an acceleration sensor, a torque sensor, etc.

[0002]

[Description of the Prior Art] Since the magnetic dipole of an element is equal to the one direction, a permanent magnet means the thing in the condition of not changing ideally which cannot change easily due to an external magnetic field, and its saturation magnetization is large and it serves as an ingredient excellent in the ingredient which a demagnetization curve shows a square shape. However, as for a magnetization condition, any magnet ingredients change all over a strong magnetic field.

[0003] As a permanent magnet, the ferrite magnet [ that it is stable and low cost ] and the highly efficient rare earth system magnet are put in practical use chemically. However, also in the neodymium magnet which has the highest engine performance among these permanent magnets put in practical use, 50 megagauss oersted (MGOe) extent of the maximum energy product which shows

magnetic strength is a limitation.

[0004] Although it will finally become the a large number problem of atomic level and the Avogadro's number if a magnetic organization is divided minutely, it is not microscopic and there is such a thing for which an atom cooperates on a macro and micro middle level, and a special function is produced. This staging area is called a meso-scopic field or nano field. The exchange spring magnet was developed based on this concept, and it is the magnet with which a high energy product is obtained because the soft magnetism phase (software phase) which consists of a permanent magnet phase (hard phase) which consists of an ingredient of high coercive force, and an ingredient of high flux density joins together magnetically by the exchange interaction.

[0005] The structure of an exchange spring magnet has the thing to which the laminating of the thin film of a hard phase and a software phase was carried out, or the common thing which distributed the particle of a software phase in the substrate of a hard phase, and is called nano composite structure. If [ macro-/ such a laminating or distribution ], the demagnetization curve which serves as coexistence of a mere hard phase and a mere software phase, and shows magnetic magnetism only serves as a snake mold. However, magnetization of a software phase is strongly restrained by magnetization of a hard phase as a laminating or distribution is a nano field, and it acts as if the whole was one hard phase. That is, when the demagnetizing space of a negative direction is applied to the exchange spring magnet to which magnetization is equal, magnetic reversal begins from the middle of a software phase, and since exchange force is strong, it becomes equal to as in the forward direction near the magnetic domain wall of a software phase and a hard phase. If the demagnetizing space applied in this condition is lost, it will return along with a demagnetization curve. Since this operation is similar to the spring operation, it is called the exchange spring magnet. In addition, since the principle is based on the exchange interaction, exchange is the display adopted as an initial.

[0006] For example, the easy direction of magnetization of a hard phase is equal

to the one direction, and the ferromagnetic composite to which the laminating of a hard phase and the soft phase is carried out by turns is considered. If a demagnetizing field is impressed in the negative direction after saturating this composite magnetically in the forward direction, magnetization will be reversed in the center section of the soft phase first. In the boundary section, since the sense is bound to the sense of magnetization of a hard phase by the exchange interaction with the magnetic moment of a hard phase, it is hard to be reversed. In the boundary section, the magnetic moment of a hard phase has an impression magnetic field slightly smaller than the field to which magnetization of a hard phase reverses the sense irreversibly although it is a fact, and if an impression magnetic field is returned to zero, it will change the springback of the system into the original condition. If an impression magnetic field kicks greatly rather than the field which magnetization of a hard phase reverses irreversibly, magnetization of the whole system is also reversed irreversibly and a system will be in the condition of having been saturated in the negative direction.

[0007] Generally magnetization of the compound used as the main phase has restricted the limitation of the magnetic maximum magnetic energy product. It is shown that a nano composite magnet exceeds theoretically the limitation of the magnetic engine performance by which current utilization is carried out, and the theoretical value of the maximum energy product of anisotropy multilayers exceeds 120MGOe(s) (9.6 MJ/m<sup>3</sup>).

[0008] For such a reason, the exchange spring magnet attracts attention as a new magnet ingredient. Development is mainly furthered about the presentation system which this exchange spring magnet made the hard phase the Nd-Fe-B system, the Sm-Fe-N system, etc., and made the soft phase Fe, Fe-B, Fe-Co, etc., by repeating a crystallization process an amorphous chemically-modified degree to JP,2000-208313,A, it is more detailed and the technique of obtaining the anisotropy exchange spring magnet powder excellent in the magnet property is indicated.

[0009] Although an exchange spring magnet can have an above very high



maximum energy product, since it was necessary to maintain the detailed diameter of crystal grain, it was difficult to realize a full DENSU magnet. That is, the conventional sintering temperature is 1000 degrees C or more, and by sintering in such an elevated temperature, crystal grain makes it big and rough, and it is remarkable. [ of degradation of a magnet property ] Therefore, the application as the so-called bond magnet (called plastic magnet, a plastic magnet, and a flexible magnet) of mixing exchange spring magnet powder with resin or rubber now, and carrying out shaping solidification is considered.

[0010] However, though natural, since the consistency of such a bond magnet serves as a value quite lower than the theoretical density of raw material powder, the maximum energy product has not attained to far the property expected from the case where raw material powder is formed into full DENSU. That is, since a magnetic energy product falls in proportion to the square of pack density, an energy product will fall to 25% that a powder filling factor is 50% compared with a bulk magnet.

[0011]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] This invention is made in view of such a situation, and it aims at having been bulk-ized, namely, offering the exchange spring magnet which has a consistency near the theoretical density of raw material powder, without spoiling a magnet property.

[0012] Moreover, it aims at offering the approach of manufacturing the exchange spring magnet which has the above-mentioned property in low temperature or a short time, to the conventional sintering conditions.

[0013] Furthermore, it aims at offering the motor using the exchange spring magnet which has the above-mentioned property, a magnetization sensor, a rotation sensor, an acceleration sensor, and a torque sensor.

[0014]

[Means for Solving the Problem] This invention which attains the above-mentioned purpose is constituted as follows for every claim.

[0015] Invention according to claim 1 is a bulk exchange spring magnet which

comes to contain the permanent magnet phase and soft magnetism phase which have the structure which came to carry out eburnation of the raw material powder, and the boron atom and the oxygen atom condensed between the particles of said raw material powder by which eburnation was carried out.

[0016] Invention according to claim 2 is a bulk exchange spring magnet according to claim 1 characterized by for a magnet ingredient empirical formula being  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$ , and being  $x=4-11$  and  $y=3-8$ .

[0017] Invention according to claim 3 is a bulk exchange spring magnet according to claim 1 characterized by for a magnet ingredient empirical formula being  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$ , and being  $x=7.5-10.5$  and  $y=5.5-7.5$ .

[0018] The ratio (concentration between particles / interior concentration of a particle) of the concentration of the boron atom between the particles of said raw material powder to the concentration of a boron atom [ in / in invention according to claim 4 / the interior of the particle of said raw material powder by which eburnation was carried out ] by which eburnation was carried out is 1.2 or more. Inside the particle of said raw material powder by which eburnation was carried out It is a bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 1-3 characterized by the ratio (concentration between particles / interior concentration of a particle) of the concentration of the oxygen atom between the particles of said raw material powder to the concentration of the oxygen atom which can be set by which eburnation was carried out being 1.2 or more.

[0019] Invention according to claim 5 is a bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 1-4 characterized by the thickness of the part which the boron atom and the oxygen atom condensed between the particles of said raw material powder by which eburnation was carried out being 65nm or more.

[0020] Invention according to claim 6 is a bulk exchange spring magnet given in any 1 term according to claim 1 to 5 characterized by the particle size of said raw material powder being 20-500 micrometers.

[0021] Invention according to claim 7 is a bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 1-5 characterized by the particle size of said raw material

powder being 80-200 micrometers.

[0022] Invention according to claim 8 is in the phase which compresses raw material powder by pressure 300-1200MPa, and the condition pressurized by said pressure. The phase which carries out a temperature rise to the retention temperature of 550-800 degrees C by 25 degrees C to the programming rate of 5-40 degrees C / min, It is the manufacture approach of a bulk exchange spring magnet given in any 1 term including the phase of carrying out 0.01-10min maintenance with said retention temperature, and carrying out eburnation of said raw material powder of claims 1-7.

[0023] Invention according to claim 9 is in the phase which compresses raw material powder by pressure 500-1200MPa, and the condition which pressurized said pressure. The phase which carries out a temperature rise to the retention temperature of 650-700 degrees C by 25 degrees C to the programming rate of 10-25 degrees C / min, It is the manufacture approach of a bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 1-7 which carries out 0.01-3min maintenance with said retention temperature, and includes the phase which sinters said raw material powder.

[0024] Invention according to claim 10 is the manufacture approach of the bulk exchange spring magnet according to claim 8 or 9 characterized by said raw material powder being the quenching thin band produced by the roll peripheral velocity 10 - 60 m/sec.

[0025] Invention according to claim 11 is the manufacture approach of the bulk exchange spring magnet according to claim 8 or 9 characterized by said raw material powder being the quenching thin band produced by the roll peripheral velocity 15 - 35 m/sec.

[0026] The pressure of the phase where invention according to claim 12 sinters said raw material powder is the manufacture approach of a bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 8-11 characterized by being  $1 \times 10^{-4}$ -9.5Pa.

[0027] The pressure of the phase where invention according to claim 13 sinters said raw material powder is the manufacture approach of a bulk exchange spring

magnet given in any 1 term of claims 8-11 characterized by being  $2 \times 10^{-4}$ -3Pa.

[0028] Invention according to claim 14 is the motor which comes to use the bulk exchange spring magnet of a publication for any 1 term of claims 1-7, a field sensor, a rotation sensor, an acceleration sensor, or a torque sensor.

[0029]

[Effect of the Invention] According to this invention constituted as mentioned above, the following effectiveness is done so for every claim.

[0030] If it is in invention according to claim 1, by having structure which boron and oxygen condensed between raw material powder, sintering becomes possible in low temperature or a short time, and big and rough-ization of crystal grain can be controlled. Consequently, it became possible to realize a good magnet property (the maximum energy density) in the bulk exchange spring magnet near the theoretical density of raw material powder.

[0031] If it is in invention given in claims 2 and 3, since magnetic coercive force and flux density are realized by the balance of the rate of a hard phase and a soft phase on high level, the bulk exchange spring magnet of high performance is obtained.

[0032] If it is in invention according to claim 4, the bulk exchange spring magnet of high performance whose crystal growth depressor effect between particles the thermal stability of the compound between particles was maintained, and whose eburnation of a bulk exchange spring magnet improved, and improved can be obtained.

[0033] If it is in invention according to claim 5, eburnation is promoted and a highly efficient bulk exchange spring magnet is obtained.

[0034] If it is in invention given in claims 6 and 7, surface area increase of raw material powder can be controlled, and a magnet property can be raised, and a raw material filling factor is raised, and the bulk exchange spring magnet of high density can be obtained.

[0035] If it is in invention given in claims 8 and 9, the bulk exchange spring magnet which has the effectiveness of claims 1-7 can be obtained.

[0036] If it is in invention given in claims 10 and 11, the bulk exchange spring magnet of high performance can be obtained more by specifying the raw material powder approach.

[0037] If it is in invention given in claims 12 and 13, the oxygen of an initial complement is supplied, the eburnation of a bulk object and the crystal growth depressor effect between particles improve, oxidation of the magnet powder itself can be controlled and a magnet property improves.

[0038] If it is in invention according to claim 14, the various products using the bulk exchange spring magnet which has the effectiveness of claims 1-7 can be obtained.

[0039]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, the concrete configuration of this invention is explained to a detail.

[0040] Invention of the 1st of this application is a bulk exchange spring magnet which comes to contain the permanent magnet phase (hard phase) and soft magnetism phase (software phase) which have the structure which came to carry out eburnation of the raw material powder, and the boron atom and the oxygen atom condensed between the particles of said raw material powder by which eburnation was carried out.

[0041] the thing in which raw material powder contains a desired element and which is amorphyously acquired in the near condition -- desirable -- various kinds, such as a melt quenching method, the mechanical alloy method, and the atomizing method, -- a well-known approach can be applied and grinding means, such as a jaw crusher and BURAUUMIRU, can be applied suitably. Among these, since amorphous-ization is fully made, the approach using a melt quenching method is one of the desirable processes in this invention.

[0042] In addition, in this invention, "eburnation" means raising the consistency of raw material powder by pressurization, sintering, etc., and means the condition that the concentration distribution of an exchange spring magnet by which eburnation was carried out as compared with the concentration distribution in raw

material powder maldistribution-izes "condensation", and it is going up about the predetermined element.

[0043] As the approach of eburation, a mold can be filled up with the raw material powder which has a near condition amorphously, and it can be heated under compression of this. By making a boron atom and an oxygen atom condense between raw material powder at this time, it can be intermingled as crystal grain with small hard phase and soft phase, and the exchange spring magnet in the bulk condition of having a consistency near the theoretical density of raw material powder, with which the magnet property is not spoiled can be manufactured. That is, there is effectiveness which the boron atom and oxygen atom which exist between powder particles promote the eburation between particles, in addition controls the grain growth between powder particles by having the magnet structure which a boron atom and an oxygen atom condense between powder particles in this invention. For this reason, big and rough-ization of the crystal grain which sintering of was attained and had become a problem in the conventional sintering in low temperature or a short time can be controlled to the conventional sintering conditions. Consequently, it became possible to realize a good magnet property in the bulk exchange spring magnet near powdered theoretical density.

[0044] The effectiveness which controls the crystal growth of a particle compared with the case of only a boron atom improves by leaps and bounds by taking the bulk structure where coincidence was made to contain not only a boron atom but an oxygen atom between raw material particles especially. This is considered to originate in the thermal stability of a B-O compound. Moreover, the effectiveness that the mechanical strength of a bulk magnet which has the structure of this invention improves is also accepted.

[0045] Although handling of the powder under the oxygen already contained to raw material powder and the high ambient atmosphere of an oxygen density, the supply from the ambient atmosphere of a precise chemically-modified degree, etc. can be considered as a source of supply of the oxygen atom of a between

[ the particles of the raw material powder by which eburnation was carried out ], it is not limited to these. However, generally, since degradation of the magnet property by oxidation produces a rare earth content magnet ingredient, installation of the oxygen atom beyond the need is not desirable. In addition, a boron atom can be made to contain beforehand in raw material powder.

[0046] the phase of the permanent magnet which consists of an ingredient of high coercive force as the hard phase was mentioned above -- it is -- various kinds -- it is possible to use a well-known ingredient and the system containing boron etc. is mentioned to the rare earth elements (a lanthanum, a cerium, a praseodymium, neodymium, samarium, a europium, a gadolinium, a terbium, a dysprosium, a holmium, an erbium, a thulium, an ytterbium, lutetium) which contain an yttrium as an example, iron and/or cobalt, and a list.

[0047] the phase of the soft magnetism which consists of an ingredient of high flux density as the soft phase was mentioned above -- it is -- various kinds -- it is possible to use a well-known ingredient, the system which contains iron and/or cobalt as an example is mentioned, and the things (a Fe-B compound, Fe-Co compound, etc.) by which a part of  $\alpha$ -Fe phase and  $\alpha$ -Fe phase were more specifically permuted by cobalt, boron, the rare earth elements containing an yttrium, etc. are mentioned.

[0048] Combination is desirable, although the combination of a hard phase and a soft phase is theoretically selectable to arbitration, and a hard phase and soft phase has high saturation magnetization in order to acquire high magnetic properties. In addition, in an exchange spring magnet, a  $\text{Fe}_3\text{Zr}$  phase etc. may be contained as crystal phases other than a hard phase and a soft phase.

[0049] As a presentation of a magnet ingredient, it has a hard phase and a soft phase in coincidence. Again Although there will be no constraint if it is the presentation which realizes structure which a boron atom and an oxygen atom condense between raw material powder When four to 11 atom % and B consist of three to 8 atom %s and the remainder consists of transition metals for

Nd (A magnet ingredient empirical formula is specifically  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$ .) When it is  $x=4-11$  and  $y=3-8$ , since magnetic coercive force and flux density are realized by the balance of the rate of a hard phase and a soft phase on high level and the magnet of high performance is obtained, are desirable. The case where Nd is 7.5 to 10.5 atom %, and B is 5.5 to 7.5 atom % is more desirable (when a magnet ingredient empirical formula is  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$  and are specifically  $x=7.5-10.5$  and  $y=5.5-7.5$ ). In addition, about Nd, a part may be permuted by Pr and/or Dy, and although transition metals use Fe as a principal component, they may permute a part by Co. Moreover, in order to promote condensation of a boron atom and an oxygen atom and to raise a magnet property, it is desirable to add an element little as some transition metals. It is desirable to carry out 0.4-5.0 atom % extent addition of one or more kinds of elements chosen from the group which consists of V, Nb, Cr, Cu, Zn, and Ti as the optimal alloying element and an addition. In addition, analysis of the element concentration in a magnet ingredient can be performed by the inductively-coupled-plasma-atomic-emission-spectrometry method.

[0050] The bulk exchange spring magnet of this invention contains the boron atom and the oxygen atom also in the particle of a bulk exchange spring magnet, and the difference of the boron atom concentration in a particle and oxygen atom concentration, and the boron atom concentration and oxygen atom concentration in the condensation section between particles affects a magnet property greatly. The ratio (concentration between particles / interior concentration of a particle) of the concentration of the boron atom between the particles of the raw material powder to the concentration of the boron atom in the interior of the particle of the raw material powder by which eburnation was carried out by which eburnation was carried out as a result of experiment examination or more by 1.2 It became clear that it is desirable that the ratio (concentration between particles / interior concentration of a particle) of the concentration of the oxygen atom between the particles of said raw material powder to the concentration of the oxygen atom in the interior of the particle of said raw material powder by which eburnation was



carried out by which eburnation was carried out is 1.2 or more. The thermal stability of the compound between particles is maintained by considering as this range, and the eburnation of a bulk object improves. Furthermore, the crystal growth depressor effect between particles improves.

[0051] In addition, the thickness of the part which the boron atom and the oxygen atom condensed is important for a magnet property between the particles of the raw material powder by which eburnation was carried out, and it is desirable that it is 65nm or more. Eburnation is promoted by considering as this range, and the consistency of the magnet after sintering improves, therefore a highly efficient magnet ingredient is obtained.

[0052] As for the particle size of raw material powder, it is desirable to have the particle size distribution from which eburnation becomes easy. Therefore, it is desirable to use the powder whose particle size is 20 micrometers - 500 micrometers. Surface area increase of raw material powder can be controlled by considering as this range, the effect of oxidation can be reduced, and a magnet property can be raised, and a raw material filling factor is raised, and the bulk magnet of high density can be realized. For the further eburnation promotion, it is desirable to use the powder whose particle size is 80-200 micrometers. In addition, in this invention, a powdered particle size takes a photograph using an optical microscope, and means the value which measured and averaged the path of the longest part of the particle observed in the photograph.

[0053] This application the 2nd invention is in the phase which compresses raw material powder by pressure 300-1200MPa, and the condition pressurized by said pressure. The phase which carries out a temperature rise to the retention temperature of 550-800 degrees C by 25 degrees C to the programming rate of 5-40 degrees C / min, It is the manufacture approach of a bulk exchange spring magnet given in any 1 term of claims 1-7 which carries out 0.01-10min maintenance with said retention temperature, and includes the phase of making said raw material powder sintering.

[0054] Although especially the temperature of the phase which compresses raw

material powder is not restricted, it is desirable to compress under the temperature of work environment from the ease of an activity and a viewpoint of cost. Moreover, in order to prevent raw material powder deteriorating by oxidation as work environment, it is desirable to consider environments, such as humidity.

[0055] It is effective to heat under compression the powder with which the mold was filled up as an eburnation process of the bulk-ized exchange spring magnet concerning this invention. In order to realize this, application of a hotpress, discharge plasma sintering, etc. is possible. Control of a programming rate is easy for it, and since especially discharge plasma sintering tends to realize an exact temperature profile, it is desirable. Moreover, there is no limit about mold material and it can use desired mold material suitably. In order to promote eburnation, to raise the magnet engine performance as process conditions in the case of the heat-treatment under compression and to obtain easily [ the theoretical density of raw material powder ] about 95% or more, 300 or more MPas of a compression pressure are desirable. Although eburnation is promoted by the increment in compressive force, if productivity is taken into consideration, it is suitable for a compression pressure that they are 1200 or less MPas.

[0056] Moreover, 5-40 degrees C / min is suitable for a programming rate. It is possible to make the condensation section of the boron atom between raw material powder and an oxygen atom increase by considering as this range, consequently eburnation improves. Moreover, the temperature distribution in a sample can be made almost uniform, and a uniform bulk object is acquired.

[0057] Furthermore, good magnetic properties can be acquired by making retention temperature and the holding time into the suitable range. 0.01 - 10 minutes of retention temperature are suitable for 550-800 degrees C and the holding time as a result of examination with these detailed conditions. The grain growth of a hard phase and a soft phase is controlled by considering as this range, improvement in a magnet property is brought about, and the consistency of a sintered compact also improves.

[0058] In addition, as for 500 - 1200MPa and a programming rate, as for 10-25 degrees C / min, and retention temperature, it can be [ 650-700 degrees C and the holding time ] desirable respectively that it is 3 or less minutes, and a compression pressure can raise a magnet property further.

[0059] When using a melt quenching method as an approach of producing raw material powder, the effect of the roll peripheral velocity in the case of quenching is large. At this time, when reservation of an amorphous content and productivity are taken into consideration, it is desirable that it is the quenching thin band produced by the roll peripheral velocity 10 - 60 m/sec. If a crystalline substance still more detailed the inside of amorphous is intermingled, improvement in a magnet property is remarkable, and in order to acquire this effectiveness, as for roll peripheral velocity, it is more desirable that it is 15 - 35 m/sec.

[0060] As for the pressure of the phase which sinters raw material powder in it, it is desirable that it is  $1 \times 10^{-4}$ -9.5Pa, and it is more desirable that it is  $2 \times 10^{-4}$ -3Pa. By pressurizing in this range, eburation is possible, without degrading a magnet property. That is, it suppresses that an oxygen atom is spread even inside magnet powder by the oxygen of an initial complement being supplied, and the eburation of a bulk object and the crystal growth depressor effect between particles improving, and an oxygen atom being supplied only between raw material powder particles, oxidation of the magnet powder itself is controlled, and a magnet property improves.

[0061] Although the above various suitable conditions existed, existence of the condensation section of the boron atom which exists between the particles of raw material powder, and an oxygen atom enabled it to raise a consistency to near the theoretical density of raw material powder, without spoiling the magnetic properties of an exchange spring magnet according to the process of low temperature and a short time compared with the conventional sintering process.

[0062] This application the 3rd invention is the motor which comes to use the bulk exchange spring magnet of said publication, a field sensor, a rotation sensor, an acceleration sensor, or a torque sensor. With the exchange spring magnet

used as the conventional bond magnet, since the bulk exchange spring magnet concerning this invention can realize the highly efficient magnet which was not obtained, when small lightweight-ization of a product can be promoted when this magnet is applied to a motor, a field sensor, a rotation sensor, an acceleration sensor, a torque sensor, etc., for example, it applies to the components for automobiles, improvement in fast fuel consumption of it is attained.

[0063] As for especially the thickness of the exchange spring magnet concerning this invention, it is desirable for it not to be restricted and to adjust suitably according to an application. Moreover, also as for the configuration of an exchange spring magnet, adjusting suitably according to an application is desirable, and it is not restricted especially.

[0064] On the other hand, since a rare earth magnet tends to oxidize, a protective coat can also be prepared in the front face of an exchange spring magnet. What is necessary is not to limit especially the configuration of a protective coat, to choose a suitable presentation according to a magnet property, and just to determine thickness that sufficient protective effect is acquired. As an example of a protective coat, a metal membrane, the inorganic compound film, and the organic compound film are mentioned. As a metal membrane, Ti, Ta, calcium, Mo, nickel, etc. are mentioned, as inorganic compound film, transition-metals oxide films, such as transition-metals nitride film, such as TiN, FeN, and CrN, and NiO, FeO, are mentioned, and the resin film which consists of an epoxy resin, phenol resin, polyurethane, polyester, etc. is mentioned as organic compound film. It is desirable to be referred to as about 0.01-10 micrometers when it constitutes a protective coat from a metal membrane or inorganic compound film, and when it constitutes a protective coat from an organic compound, as for the thickness of a protective coat, it is desirable that it is about 3-10 micrometers.

[0065] Various well-known techniques are applicable to processing of an exchange spring magnet suitably. That is, grinding (outside grinding, internal grinding, surface grinding, molding grinding), cutting (periphery cutting, inner

circumference cutting), wrapping, beveling, etc. are processible. As processing tools, a diamond, a GC grindstone, an outside inner circumference cutting machine, an outside inner circumference grinding machine, a surface-grinding machine, NC engine lathe, a milling machine, a machining center, etc. can use.  
[0066]

[Example] Hereafter, the concrete example of this invention is shown and this invention is further explained to a detail.

[0067] <Example 1> drawing 1 shows the relative value of a magnet property (maximum energy product) to change of x and y of the bulk magnet obtained on the following manufacture conditions in the  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$  presentation.

- presentation: --  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$  and raw material powder production condition:  
-- a melt quenching method -- roll peripheral-velocity =20 m/sec and raw material powder particle-size: -- 100 micrometer and sintering condition: -- welding-pressure = -- 800 MPa At the time of the programming rate of 20 degrees C / min, the retention temperature of 675 degrees C, holding-time 5min, and baking, so that clearly from ambient pressure force = $2.6 \times 10^{-4}$ Pa drawing 1 A magnetic maximum energy product improves in  $x=4-11$  and  $y=3-8$ , and when it is  $x=7.5-10.5$  and  $y=5.5-7.5$ , it turns out that effectiveness is remarkable. Moreover, also in what permuted the part by Pr or Dy, the thing which permuted a part of Fe by Co, and the thing which added the element little as a part of Fe or Co (one or more kinds of elements chosen from the group which consists of V, Nb, Cr, Cu, Zn, and Ti are 0.4 - 5.0 atom % extent), improvement in a magnet property was checked in the same presentation range.

[0068] <Example 2> drawing 2 is an example thing about relation with magnetic properties as compared with the interior of raw material powder in B concentration and O concentration between the raw material particles of the bulk magnet obtained on various production conditions about the bulk magnet of  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$ ,  $x=4-11$ , and  $y=3$  to 8 presentation. Improvement in a magnet property (maximum energy product) was accepted to be clear from drawing for each ratio of concentration of B atom and O atom to the case of 1.2 or more.

[0069] <Example 3> drawing 3 is an example thing about the relation of the thickness of a part and magnetic properties which B atom and O atom between the raw material particles of the bulk magnet obtained on various production conditions condensed about the bulk magnet of  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$ ,  $x=4-11$ , and  $y=3$  to 8 presentation. In 65nm or more, the magnet property (maximum energy product) of thickness of the condensation section of B and O atom was improving so that clearly from drawing.

[0070] <Example 4> drawing 4 shows the relation between raw material powder particle size and a magnet property (maximum energy product) about the bulk magnet of  $\text{Nd}_9\text{Dy}_1\text{Fe}_{77}\text{Co}_5\text{Nb}_2\text{B}_6$  presentation. The production conditions of a bulk magnet are the following.

- presentation: --  $\text{Nd}_9\text{Dy}_1\text{Fe}_{77}\text{Co}_5\text{Nb}_2\text{B}_6$  and raw material powder production condition: -- the magnet property improved in the raw material powder particle size of 20-500 micrometers, and when it was 80-200 micrometers, the magnet property improved more, so that a melt quenching method, roll peripheral-velocity =30 m/sec and sintering condition:welding-pressure =1000MPa and the programming rate of 24 degrees C / min, the retention temperature of 650 degrees C, holding-time 3min, and ambient pressure force = $2.6 \times 10^{-4}$ Pa drawing 4 might show.

[0071] <Example 5> drawing 5 shows the welding pressure at the time of sintering, and the relation of a magnet property (maximum energy product) about the bulk magnet of five  $\text{BNd}_7\text{Dy}_1\text{Fe}_{74}\text{Co}_5\text{Cr}_8$  presentation. The production conditions of a bulk magnet are the following.

- presentation: --  $\text{Nd}_7\text{Dy}_1\text{Fe}_{74}\text{Co}_5\text{Cr}_5\text{B}_8$  and raw material powder production condition: -- the magnet property improved in welding-pressure 300-1200MPa, and when it was 500-1200MPa, the magnet property improved more, so that a melt quenching method, roll peripheral-velocity =15 m/sec and the sintering condition:programming rate of 30 degrees C / min, the retention temperature of 675 degrees C, holding-time 5min, and ambient pressure force = $2.6 \times 10^{-4}$ Pa drawing 5 might show.

[0072] <Example 6> drawing 6 shows the programming rate at the time of sintering, and the relation of a magnet property (maximum energy product) about the bulk magnet of a Nd<sub>4</sub>Tb<sub>1</sub>Fe<sub>81</sub>Co<sub>7</sub>Cu<sub>3</sub> B<sub>4</sub> presentation. The production conditions of a bulk magnet are the following.

- presentation: -- Nd<sub>4</sub>Tb<sub>1</sub>Fe<sub>81</sub>Co<sub>7</sub>Cu<sub>3</sub> B<sub>4</sub> and raw material powder production condition: -- as shown in a melt quenching method, roll peripheral-velocity =50 m/sec and sintering condition:welding-pressure =500MPa, the retention temperature of 640 degrees C, holding-time 8min, and an ambient pressure force = $2.6 \times 10^{-4}$ Pa Fig., the magnet property of a programming rate improved in 5-40 degrees C / min, and when it was 10-25 degrees C / min, the magnet property improved more.

[0073] <Example 7> drawing 7 shows the retention temperature at the time of sintering, and the relation of a magnet property (maximum energy product) about the bulk magnet of a Nd<sub>10</sub>Fe<sub>75</sub>Co<sub>8</sub>V<sub>1</sub> E<sub>6</sub> presentation. The production conditions of a bulk magnet are the following.

- presentation: -- Nd<sub>10</sub>Fe<sub>75</sub>Co<sub>8</sub>V<sub>1</sub> B<sub>6</sub> and raw material powder production condition: -- the magnet property of retention temperature improved in 550-800 degrees C, and when it was 650-700 degrees C, it improved more, so that 22 degrees C / min, holding-time 0min, and ambient pressure force = $2.6 \times 10^{-4}$ Pa drawing 7 might show a melt quenching method, roll peripheral-velocity =15 m/sec and sintering condition:welding-pressure =1000MPa, and a programming rate.

[0074] <Example 8> drawing 8 shows the retention temperature at the time of sintering, and the relation of a magnet property (maximum energy product) about the bulk magnet of Nd<sub>8</sub>Dy<sub>1</sub>Fe<sub>75</sub>Co<sub>4</sub>V 2B<sub>7</sub> presentation. The production conditions of a bulk magnet are the following.

- presentation: -- Nd<sub>8</sub>Dy<sub>1</sub>Fe<sub>75</sub>Co<sub>4</sub>V 2B<sub>7</sub> and raw material powder production condition: -- the magnet property of the holding time improved in 0 - 10min, and when it was 0 - 3min, it improved more, so that 10 degrees C / min, and retention temperature might understand a melt quenching method, roll peripheral-velocity

=20 m/sec and sintering condition:welding-pressure =300MPa, and a programming rate from 700 degrees C and ambient pressure force = $2.6 \times 10^{-4}$ Pa drawing 8 .

[0075] <Example 9> drawing 9 shows the retention temperature at the time of sintering, and the relation of a magnet property (maximum energy product) about the bulk magnet of Nd<sub>8</sub>Tb<sub>2</sub>Fe<sub>75</sub>Co<sub>5</sub>Nb<sub>2</sub>B<sub>8</sub> presentation. The production conditions of a bulk magnet are the following.

- presentation: -- Nd<sub>8</sub>Tb<sub>2</sub>Fe<sub>75</sub>Co<sub>5</sub>Nb<sub>2</sub>B<sub>8</sub> and raw material powder production condition: -- a melt quenching method and sintering condition: -- the magnet property of roll peripheral velocity improved in 10 - 60 m/sec, and when it was 15 - 35 m/sec, it improved more, so that 25 degrees C / min, holding-time 2min, and retention temperature might understand welding-pressure =1000MPa and a programming rate from 680 degrees C and ambient pressure force = $2.6 \times 10^{-4}$ Pa drawing 9 .

[0076] <Example 10> drawing 10 shows the retention temperature at the time of sintering, and the relation of a magnet property (maximum energy product) about the bulk magnet of a Nd<sub>10</sub>Fe<sub>75</sub>Co<sub>8</sub>V<sub>1</sub> B<sub>6</sub> presentation. The production conditions of a bulk magnet are the following.

- presentation: -- Nd<sub>8</sub>Tb<sub>2</sub>Fe<sub>75</sub>Co<sub>5</sub>Nb<sub>2</sub>B<sub>8</sub> and raw material powder production condition: -- in  $1 \times 10^{-4}$ - $9.5 \times 10^{-4}$ Pa, the magnet property of ambient pressure force at the time of sintering improved, and when it was  $2 \times 10^{-4}$ - $3 \times 10^{-4}$ Pa, it improved more, so that 20 degrees C / min, holding-time 0min, and retention temperature might understand a melt quenching method, roll peripheral-velocity =20 m/sec and sintering condition:welding-pressure =1000MPa, and a programming rate from 650-degree-C drawing 10 .

[0077] <Example 11> drawing 11 is the example which applied the bulk magnet to the motor for a drive of an electric vehicle or a hybrid electric vehicle. When comparative experiments with the motor using the conventional bond magnet were conducted, the maximum torque increased by 1.4 times.

---



[Translation done.]

**\* NOTICES \***

**JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**DESCRIPTION OF DRAWINGS**

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] In a  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$  presentation, it is drawing showing the relative value of the magnet engine performance to change of x and y of the bulk magnet obtained on the following manufacture conditions.

[Drawing 2] It is drawing showing relation with magnetic properties for B concentration and O concentration between the raw material particles of a bulk magnet as compared with the interior of raw material powder about the bulk magnet of  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$ ,  $x=4-11$ , and  $y=3$  to 8 presentation.

[Drawing 3] It is drawing showing the relation between the thickness of the quantity B between the raw material particles of a bulk magnet, and O concentration section, and magnetic properties about the bulk magnet of  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{By}$ ,  $x=4-11$ , and  $y=3$  to 8 presentation.

[Drawing 4] It is drawing showing the relation between raw material powder particle size and a magnet property about the bulk magnet of  $\text{Nd}_9\text{Dy}_1\text{Fe}_{77}\text{Co}_5\text{Nb}_2\text{B}_6$  presentation.

[Drawing 5] It is drawing showing the welding pressure at the time of sintering, and the relation of a magnet property about the bulk magnet of five  $\text{BNd}_7\text{Dy}_1\text{Fe}_{74}\text{Co}_5\text{Cr}_8$  presentation.

[Drawing 6] It is drawing showing the programming rate at the time of sintering, and the relation of a magnet property about the bulk magnet of a Nd4Tb1Fe81Co7Cu3 B4 presentation.

[Drawing 7] It is drawing showing the retention temperature at the time of sintering, and the relation of a magnet property about the bulk magnet of a Nd10Fe75Co8V1 B6 presentation.

[Drawing 8] It is drawing showing the retention temperature at the time of sintering, and the relation of a magnet property about the bulk magnet of Nd8Dy1Fe75Co4V 2B7 presentation.

[Drawing 9] It is drawing showing the retention temperature at the time of sintering, and the relation of a magnet property about the bulk magnet of Nd8Tb2Fe75Co5Nb2B8 presentation.

[Drawing 10] It is drawing showing the retention temperature at the time of sintering, and the relation of a magnet property about the bulk magnet of a Nd10Fe75Co8V1 B6 presentation.

[Drawing 11] It is drawing showing the example which applied the bulk magnet to the motor for a drive of an electric vehicle or a hybrid electric vehicle.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

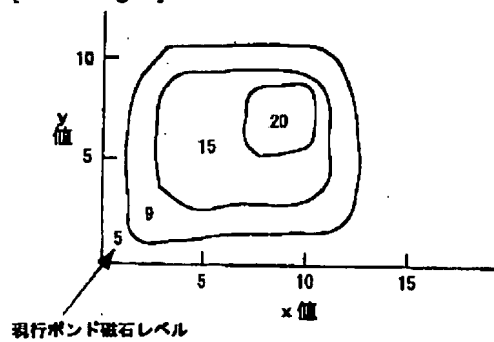
JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

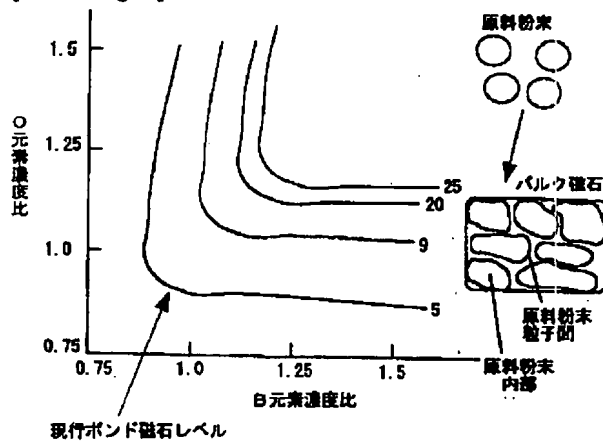
---

**DRAWINGS**

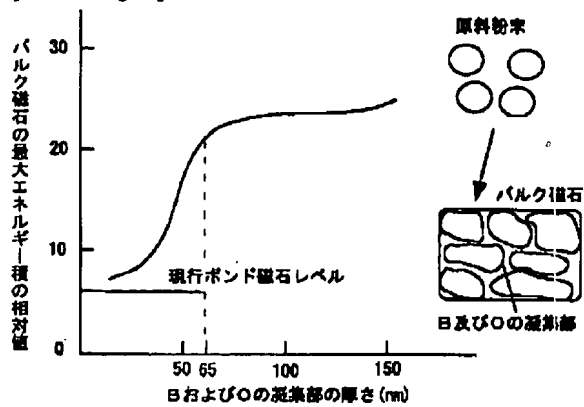
[Drawing 1]



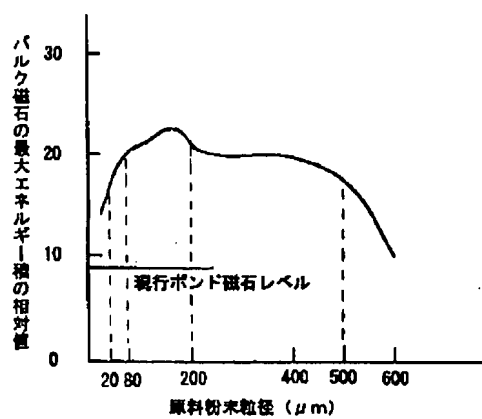
[Drawing 2]



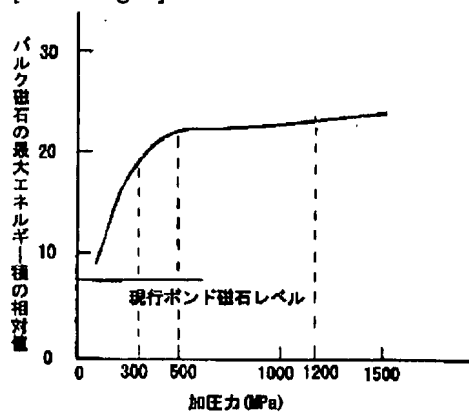
[Drawing 3]



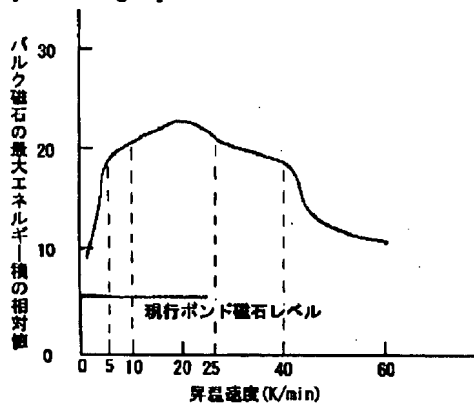
[Drawing 4]



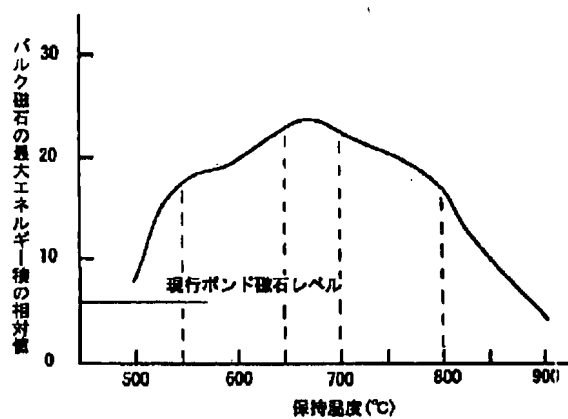
[Drawing 5]



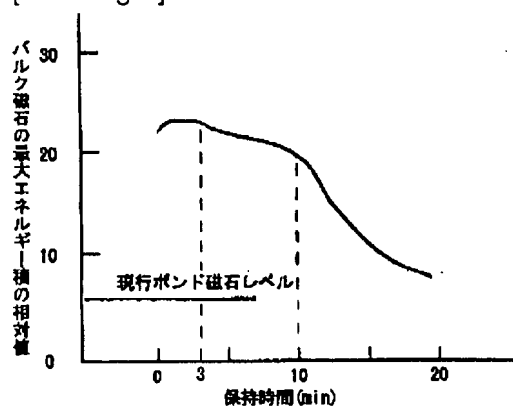
[Drawing 6]



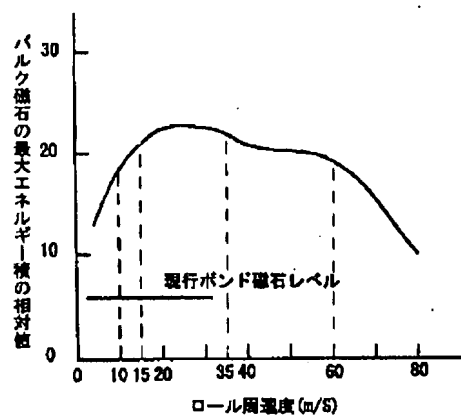
[Drawing 7]



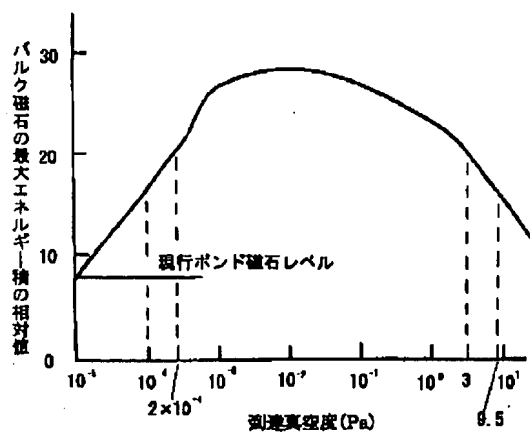
[Drawing 8]



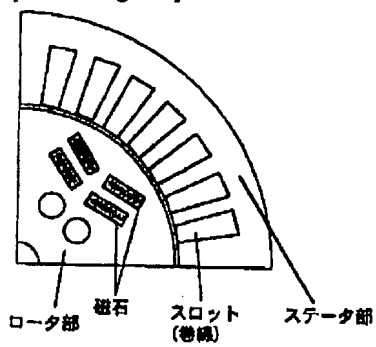
[Drawing 9]



[Drawing 10]



[Drawing 11]



[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-100507

(P2002-100507A)

(43) 公開日 平成14年4月5日 (2002.4.5)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード*(参考)		
H 0 1 F	1/08	H 0 1 F	1/08	B	2 G 0 1 7
B 2 2 F	1/00	B 2 2 F	1/00	Y	4 K 0 1 7
	3/00		3/00	E	4 K 0 1 8
	3/10		3/10	E	5 E 0 4 0
	9/10		9/10		5 E 0 6 2
審査請求 未請求 請求項の数14 O L (全 11 頁) 最終頁に続く					

(21) 出願番号 特願2000-291692 (P2000-291692)

(22) 出願日 平成12年9月26日 (2000.9.26)

(71) 出願人 000003997

日産自動車株式会社

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地

(72) 発明者 脇 憲尚

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産

自動車株式会社内

(72) 発明者 小野 秀昭

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産

自動車株式会社内

(74) 代理人 100072349

弁理士 八田 幹雄 (外4名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 交換スプリング磁石およびその製造方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 磁石特性を損なわずに、バルク化された交換スプリング磁石、及びその製造方法、並びに前記交換スプリング磁石を有するモーター、センサ等を提供することを目的とする。

【解決手段】 原料粉末を緻密化してなり、前記緻密化された原料粉末の粒子間にホウ素原子および酸素原子が凝集した構造を有する、永久磁石相および軟磁性相とを含んでなるバルク交換スプリング磁石、およびその製造方法、並びに前記バルク交換スプリング磁石を用いてなるモーター、センサ等。この磁石材料はNd-Fe-B系である。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 原料粉末を緻密化してなり、前記緻密化された原料粉末の粒子間にホウ素原子および酸素原子が凝集した構造を有する、永久磁石相および軟磁性相とを含んでなるバルク交換スプリング磁石。

【請求項2】 磁石材料組成式が $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_y$ であって、 $x=4\sim 11$ 、 $y=3\sim 8$ であることを特徴とする請求項1記載のバルク交換スプリング磁石。

【請求項3】 磁石材料組成式が $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_y$ であって、 $x=7.5\sim 10.5$ 、 $y=5.5\sim 7.5$ であることを特徴とする請求項1記載のバルク交換スプリング磁石。

【請求項4】 前記緻密化された原料粉末の粒子内部におけるホウ素原子の濃度に対する前記緻密化された原料粉末の粒子間のホウ素原子の濃度の比（粒子間濃度／粒子内部濃度）が1.2以上で、

前記緻密化された原料粉末の粒子内部における酸素原子の濃度に対する前記緻密化された原料粉末の粒子間の酸素原子の濃度の比（粒子間濃度／粒子内部濃度）が1.2以上であることを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石。

【請求項5】 前記緻密化された原料粉末の粒子間にホウ素原子および酸素原子が凝集した部位の厚さが65nm以上であることを特徴とする請求項1～4のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石。

【請求項6】 前記原料粉末の粒径が20～500 $\mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項1～5記載のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石。

【請求項7】 前記原料粉末の粒径が80～200 $\mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項1～5のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石。

【請求項8】 原料粉末を圧力300～1200MPaで圧縮する段階と、前記圧力で加圧した状態で、25℃から昇温速度5～40℃/minで550～800℃の保持温度まで温度上昇させる段階と、前記保持温度で0.01～10min保持し、前記原料粉末を緻密化させる段階とを含む、請求項1～7のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法。

【請求項9】 原料粉末を圧力500～1200MPaで圧縮する段階と、前記圧力を加圧した状態で、25℃から昇温速度10～25℃/minで650～700℃の保持温度まで温度上昇させる段階と、前記保持温度で0.01～3min保持し、前記原料粉末を焼結する段階とを含む、請求項1～7のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法。

【請求項10】 前記原料粉末は、ロール周速度10～60m/secで作製した急冷薄帯であることを特徴とする請求項8または9に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法。

【請求項11】 前記原料粉末は、ロール周速度15～

35m/secで作製した急冷薄帯であることを特徴とする請求項8または9に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法。

【請求項12】 前記原料粉末を焼結する段階の圧力は、 $1\times 10^{-4}\sim 9.5\text{Pa}$ であることを特徴とする請求項8～11のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法。

【請求項13】 前記原料粉末を焼結する段階の圧力は、 $2\times 10^{-4}\sim 3\text{Pa}$ であることを特徴とする請求項8～11のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法。

【請求項14】 請求項1～7のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石を用いてなるモータ、磁界センサ、回転センサ、加速度センサ、またはトルクセンサ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、モータ、磁界センサ、回転センサ、加速度センサ、トルクセンサ等に好適に用いることができる高出力磁石材料に関し、より詳しくは、特性の磁性が向上したバルク交換スプリング磁石に関する。

## 【0002】

【従来の技術】永久磁石とは、要素の磁気双極子が一方方向に揃っているため外部の磁場により変化しにくい、理想的には変化しない状態にあるものをいい、飽和磁化が大きく、かつ減磁曲線が角型を示す材料が優れた材料となる。ただし、強い磁場中ではどんな磁石材料も磁化状態は変化するものではある。

【0003】永久磁石としては、化学的に安定で低コストなフェライト磁石や高性能な希土類系磁石が実用化されている。しかしながらこれらの実用化されている永久磁石のうち最高性能を持つネオジム磁石においても、磁石の強さを示す最大エネルギー積は50メガガウスエルステッド(MGOe)程度が限界である。

【0004】磁石の組織を微細に分割すると、最終的には原子レベル、アボガドロ数の多数問題となるが、このような極微ではなくマクロとミクロの中間レベルで原子が協調して特殊機能を生み出すことがある。この中間領域をメソスコピック領域またはナノ領域という。この概念に基づいて開発されたのが交換スプリング磁石であり、高保磁力の材料からなる永久磁石相（ハード相）と高磁束密度の材料からなる軟磁性相（ソフト相）とが交換相互作用により磁氣的に結合することで、高エネルギー積が得られる磁石である。

【0005】交換スプリング磁石の構造は、ハード相とソフト相の薄膜を積層させたもの、またはハード相の基質の中にソフト相の微粒子を分散させたものが一般的であり、ナノコンポジット構造と呼ばれている。このような積層または分散がマクロ的なものであれば、単なるハ



ード相とソフト相の共存となり磁石の磁性を示す減磁曲線はヘビ型となるだけである。ところが、積層または分散がナノ領域であると、ソフト相の磁化はハード相の磁化によって強く拘束され、全体があたかも一つのハード相であるかのように振る舞う。すなわち、磁化が揃っている交換スプリング磁石に負の方向の減磁場をかけたとき、磁化の反転はソフト相の中間から始まり、ソフト相とハード相との磁壁付近では交換力が強いので正方向に揃ったままとなる。この状態でかけていた減磁場をなくすと減磁曲線に沿って元に戻る。この作用がスプリング作用に類似しているため、交換スプリング磁石と称されている。なお、交換とはその原理が交換相互作用に基づいているため頭文字として採用された表示である。

【0006】例えば、ハード相の磁化容易方向が一方方向に揃っており、ハード相とソフト相とが交互に積層されている強磁性コンポジットについて考える。このコンポジットを正方向に磁氣的に飽和させたのち負方向に減磁界を印加すると、まずソフト相の中央部で磁化が反転する。境界部ではハード相の磁気モーメントとの交換相互作用により、その向きはハード相の磁化の向きに束縛されているので、反転しにくい。ハード相の磁気モーメントも境界部ではわずかに向きをかえるであろうが、ハード相の磁化が不可逆に反転する磁界よりも印加磁場が小さければ、印加磁場をゼロに戻せば系は元の状態にスプリングバックする。もし、ハード相の磁化が不可逆に反転する磁界よりも印加磁場が大きければ、系全体の磁化も不可逆に反転し、系は負方向に飽和した状態となる。

【0007】一般に磁石の最大磁気エネルギー積の限界を制限しているのは、主相となっている化合物の磁化である。ナノコンポジット磁石は、現在実用化されている磁石の性能の限界を理論的には超えることが示されており、異方性多層膜の最大エネルギー積の理論値は120 MGOe (9.6 MJ/m<sup>3</sup>) を超えるものとなる。

【0008】このような理由により、交換スプリング磁石は新たな磁石材料として注目を集めている。この交換スプリング磁石は、ハード相をNd-Fe-B系やSm-Fe-N系などにし、ソフト相をFe、Fe-B、Fe-Coなどとした組成系に関して主に開発が進められており、特開2000-208313号公報にはアモルファス化工程と結晶化工程とを繰り返すことによりより微細で磁石特性に優れた異方性交換スプリング磁石粉末を得る技術が開示されている。

【0009】交換スプリング磁石は上述のように極めて高い最大エネルギー積を有することが可能であるが、微細な結晶粒径を維持する必要があるためフルデンス磁石を実現することが困難であった。すなわち、従来の焼結温度は1000℃以上であり、このような高温での焼結では結晶粒が粗大化してしまい、磁石特性の劣化が著しい。従って、現在のところ交換スプリング磁石粉末を樹

脂やゴムに混ぜ込み、成形固化するといった、いわゆるボンド磁石（プラマグ、プラスチック磁石、ゴム磁石とも呼ばれる）としての適用が検討されている。

【0010】しかしながら、このようなボンド磁石の密度は当然ながら原料粉末の理論密度よりかなり低い値となるため、最大エネルギー積は原料粉末がフルデンス化された場合から予想される特性には遥かに及ばないものとなっている。すなわち、磁石のエネルギー積は充填密度の2乗に比例して低下するため、例えば粉末充填率が50%であると、エネルギー積はバルク磁石に比べ25%に落ちてしまう。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】本発明はこのような事情に鑑みなされたものであり、磁石特性を損なわずに、バルク化された、すなわち原料粉末の理論密度に近い密度を有する交換スプリング磁石を提供することを目的とする。

【0012】また、従来の焼結条件に対して、低温または短時間で上記特性を有する交換スプリング磁石を製造する方法を提供することを目的とする。

【0013】さらに、上記特性を有する交換スプリング磁石を用いたモータ、磁化センサ、回転センサ、加速度センサ、およびトルクセンサを提供することを目的とする。

【0014】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成する本発明は、各請求項毎に次のように構成される。

【0015】請求項1に記載の発明は、原料粉末を緻密化してなり、前記緻密化された原料粉末の粒子間にホウ素原子および酸素原子が凝集した構造を有する、永久磁石相および軟磁性相とを含んでなるバルク交換スプリング磁石である。

【0016】請求項2に記載の発明は、磁石材料組成式がNd<sub>x</sub>Fe<sub>100-x-y</sub>B<sub>y</sub>であって、x=4~11、y=3~8であることを特徴とする請求項1記載のバルク交換スプリング磁石である。

【0017】請求項3に記載の発明は、磁石材料組成式がNd<sub>x</sub>Fe<sub>100-x-y</sub>B<sub>y</sub>であって、x=7.5~10.5、y=5.5~7.5であることを特徴とする請求項1記載のバルク交換スプリング磁石である。

【0018】請求項4に記載の発明は、前記緻密化された原料粉末の粒子内部におけるホウ素原子の濃度に対する前記緻密化された原料粉末の粒子間のホウ素原子の濃度の比（粒子間濃度/粒子内部濃度）が1.2以上で、前記緻密化された原料粉末の粒子内部における酸素原子の濃度に対する前記緻密化された原料粉末の粒子間の酸素原子の濃度の比（粒子間濃度/粒子内部濃度）が1.2以上であることを特徴とする請求項1~3のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石である。

【0019】請求項5に記載の発明は、前記緻密化され

た原料粉末の粒子間にホウ素原子および酸素原子が凝集した部位の厚さが65nm以上であることを特徴とする請求項1〜4のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石である。

【0020】請求項6に記載の発明は、前記原料粉末の粒径が20〜500 $\mu$ mであることを特徴とする請求項1〜5記載のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石である。

【0021】請求項7に記載の発明は、前記原料粉末の粒径が80〜200 $\mu$ mであることを特徴とする請求項1〜5のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石である。

【0022】請求項8に記載の発明は、原料粉末を圧力300〜1200MPaで圧縮する段階と、前記圧力で加圧した状態で、25℃から昇温速度5〜40℃/minで550〜800℃の保持温度まで温度上昇させる段階と、前記保持温度で0.01〜10min保持し、前記原料粉末を緻密化させる段階とを含む、請求項1〜7のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法である。

【0023】請求項9に記載の発明は、原料粉末を圧力500〜1200MPaで圧縮する段階と、前記圧力を加圧した状態で、25℃から昇温速度10〜25℃/minで650〜700℃の保持温度まで温度上昇させる段階と、前記保持温度で0.01〜3min保持し、前記原料粉末を焼結する段階とを含む、請求項1〜7のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法である。

【0024】請求項10に記載の発明は、前記原料粉末は、ロール周速度10〜60m/secで作製した急冷薄帯であることを特徴とする請求項8または9に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法である。

【0025】請求項11に記載の発明は、前記原料粉末は、ロール周速度15〜35m/secで作製した急冷薄帯であることを特徴とする請求項8または9に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法である。

【0026】請求項12に記載の発明は、前記原料粉末を焼結する段階の圧力は、 $1 \times 10^{-4}$ 〜9.5Paであることを特徴とする請求項8〜11のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法である。

【0027】請求項13に記載の発明は、前記原料粉末を焼結する段階の圧力は、 $2 \times 10^{-4}$ 〜3Paであることを特徴とする請求項8〜11のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法である。

【0028】請求項14に記載の発明は、請求項1〜7のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石を用いてなるモータ、磁界センサ、回転センサ、加速度センサ、またはトルクセンサである。

【0029】

【発明の効果】以上のように構成された本発明によれば、

各請求毎に次のような効果を奏する。

【0030】請求項1に記載の発明にあっては、原料粉末間にホウ素および酸素が凝集した構造をすることにより、低温又は短時間で焼結が可能となり、結晶粒の粗大化を抑制することができる。その結果、原料粉末の理論密度に近いバルク交換スプリング磁石において良好な磁石特性（最大エネルギー密度）を実現することが可能となった。

【0031】請求項2および3に記載の発明にあっては、ハード相とソフト相の割合のバランスにより磁石の保磁力と磁束密度が高いレベルで実現されるため高性能のバルク交換スプリング磁石が得られる。

【0032】請求項4に記載の発明にあっては、粒子間化合物の熱安定性が維持されバルク交換スプリング磁石の緻密化が向上し、また粒子間の結晶成長抑制効果が向上した、高性能のバルク交換スプリング磁石を得ることができる。

【0033】請求項5に記載の発明にあっては、緻密化が促進され、高性能なバルク交換スプリング磁石が得られる。

【0034】請求項6および7に記載の発明にあっては、原料粉末の表面積増大を抑制して磁石特性を向上させることができ、また原料充填率を向上させて高密度のバルク交換スプリング磁石を得られる。

【0035】請求項8および9に記載の発明にあっては、請求項1〜7の効果を有するバルク交換スプリング磁石を得ることができる。

【0036】請求項10および11に記載の発明にあっては、原料粉末方法を規定することにより、より高性能のバルク交換スプリング磁石を得ることができる。

【0037】請求項12および13に記載の発明にあっては、必要量の酸素が供給されてバルク体の緻密化及び粒子間の結晶成長抑制効果が向上し、磁石粉末自体の酸化を抑制することができ、磁石特性が向上する。

【0038】請求項14に記載の発明にあっては、請求項1〜7の効果を有するバルク交換スプリング磁石を利用した各種製品を得ることができる。

【0039】

【発明の実施の形態】以下、本発明の具体的構成について詳細に説明する。

【0040】本願の第1の発明は、原料粉末を緻密化してなり、前記緻密化された原料粉末の粒子間にホウ素原子および酸素原子が凝集した構造を有する、永久磁石相（ハード相）および軟磁性相（ソフト相）とを含んでなるバルク交換スプリング磁石である。

【0041】原料粉末は、所望の元素を含むアモルファスに近い状態で得ることが好ましく、液体急冷法、メカニカルアロイ法、アトマイズ法など各種公知の方法が適用可能であり、また、ジョークラッシャー、ブラウンミル等の粉碎手段を適宜適用することができる。このう

ち、液体急冷法を用いた方法は、アモルファス化が十分になされるため本発明において好ましいプロセスの一つである。

【0042】なお、本発明において、「緻密化」とは加圧や焼結などにより原料粉末の密度を向上させることをいい、「凝集」とは所定の元素について原料粉末における濃度分布と比較して、緻密化された交換スプリング磁石の濃度分布が偏在化して上昇している状態をいう。

【0043】緻密化の方法としては、アモルファスに近い状態を持つ原料粉末を型に充填しこれを圧縮下で加熱することができる。このとき原料粉末の間にホウ素原子と酸素原子を凝集させることによりハード相とソフト相とが小さな結晶粒として混在し、磁石特性が損われていない、原料粉末の理論密度付近の密度を有するバルク状態の交換スプリング磁石を製造することができる。すなわち、本発明においてはホウ素原子および酸素原子が粉末粒子間に凝縮する磁石構造を持つことにより、粉末粒子間に存在するホウ素原子および酸素原子が粒子間の緻密化を促進し、加えて、粉末粒子間の粒成長を抑制する効果がある。このため、従来の焼結条件に対して低温又は短時間で焼結が可能となり、従来の焼結において問題となっていた結晶粒の粗大化を抑制することができる。その結果、粉末の理論密度に近いバルク交換スプリング磁石において良好な磁石特性を実現することが可能となった。

【0044】特に、原料粒子間にホウ素原子のみならず酸素原子を同時に含有させたバルク構造を取ることによって、ホウ素原子のみの場合に比べて粒子の結晶成長を抑制する効果が飛躍的に向上する。これはB-O化合物の熱的安定性に起因するものと考えられる。また、本発明の構造を有するバルク磁石の機械的強度が向上する効果も認められている。

【0045】緻密化された原料粉末の粒子間への酸素原子の供給源としては、原料粉末にすでに含有されている酸素、酸素濃度の高い雰囲気下での粉末のハンドリング、緻密化工程における雰囲気からの供給、などが考えられるが、これらに限定されるものではない。しかしながら、一般的に希土類含有磁石材料は酸化による磁石特性の劣化が生じるため、必要以上の酸素原子の導入は好ましくない。なお、ホウ素原子は、原料粉末中に予め含有させることができる。

【0046】ハード相は、上述したように高保磁力の材料からなる永久磁石の相であり各種公知の材料を用いることが可能であり、具体例としてはイットリウムを含む希土類元素（ランタン、セリウム、プラセオジム、ネオジム、サマリウム、ユウロピウム、ガドリニウム、テルビウム、ジスプロシウム、ホルミウム、エルビウム、ツリウム、イッテルビウム、ルテチウム）、鉄および／またはコバルト、並びにホウ素を含有する系などが挙げられる。

【0047】ソフト相は、上述したように高磁束密度の材料からなる軟磁性の相であり各種公知の材料を用いることが可能であり、具体例としては鉄および／またはコバルトを含む系が挙げられ、より具体的には、 $\alpha$ -Fe相、 $\alpha$ -Fe相の一部がコバルト、ホウ素、イットリウムを含む希土類元素などで置換されたもの（Fe-B化合物、Fe-Co化合物、など）が挙げられる。

【0048】原理的にはハード相とソフト相との組み合わせは任意に選択可能であるが、高い磁気特性を得るためにはハード相、ソフト相ともに高い飽和磁化を有するものの組み合わせが望ましい。なお、交換スプリング磁石中には、ハード相およびソフト相以外の結晶相として、 $\text{Fe}_3\text{Zr}$ 相などが含まれることがある。

【0049】磁石材料の組成としては、ハード相とソフト相とを同時に有し、また、原料粉末間にホウ素原子および酸素原子が凝集する構造を実現する組成であれば制約はないが、Ndが4～11原子%、Bが3～8原子%、残部が遷移金属で構成される場合（具体的には、磁石材料組成式が $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_y$ であって、 $x=4\sim11$ 、 $y=3\sim8$ である場合）に、ハード相とソフト相の割合のバランスにより磁石の保磁力と磁束密度が高いレベルで実現されるため高性能の磁石が得られるため好ましく、Ndが7.5～10.5原子%、Bが5.5～7.5原子%である場合（具体的には、磁石材料組成式が $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_y$ であって、 $x=7.5\sim10.5$ 、 $y=5.5\sim7.5$ である場合）がより好ましい。なお、Ndについては一部をPrおよび／またはDyで置換してもよく、遷移金属はFeを主成分とするが一部をCoで置換したものであってもよい。また、ホウ素原子および酸素原子の凝集を助長し磁石特性を向上させるため、遷移金属の一部として少量の元素を添加することが好ましい。最適な添加元素及び添加量としては、V、Nb、Cr、Cu、Zn、およびTiからなる群より選択される1種類以上の元素を0.4～5.0原子%程度添加することが好ましい。なお、磁石材料中の元素濃度の分析は、誘導結合プラズマ発光分析法により行うことができる。

【0050】本発明のバルク交換スプリング磁石は、バルク交換スプリング磁石の粒子内にもホウ素原子および酸素原子を含有しており、粒子内のホウ素原子濃度および酸素原子濃度と、粒子間の凝集部におけるホウ素原子濃度および酸素原子濃度との差が、磁石特性に大きく影響を与える。実験検討の結果、緻密化された原料粉末の粒子内部におけるホウ素原子の濃度に対する緻密化された原料粉末の粒子間のホウ素原子の濃度の比（粒子間濃度／粒子内部濃度）が1.2以上で、前記緻密化された原料粉末の粒子内部における酸素原子の濃度に対する前記緻密化された原料粉末の粒子間の酸素原子の濃度の比（粒子間濃度／粒子内部濃度）が1.2以上であることが好ましいことが明らかになった。この範囲とすること

で粒子間化合物の熱安定性が維持され、バルク体の緻密化が向上する。さらに粒子間の結晶成長抑制効果が向上する。

【0051】なお、緻密化された原料粉末の粒子間にホウ素原子および酸素原子が凝集した部位の厚さが磁石特性にとって重要であり、65 nm以上であることが好ましい。この範囲とすることで緻密化が促進されて焼結後の磁石の密度が向上し、従って、高性能な磁石材料が得られる。

【0052】原料粉末の粒径は、緻密化が容易となる粒度分布を持つことが望ましい。そのため粒径が20  $\mu\text{m}$  ~ 500  $\mu\text{m}$  の粉末を使用することが好ましい。この範囲とすることで原料粉末の表面積増大を抑制して酸化の影響を低減させ磁石特性を向上させることができ、また原料充填率を向上させて高密度のバルク磁石を実現できる。さらなる緻密化促進のためには、粒径が80 ~ 200  $\mu\text{m}$  の粉末を使用することが好ましい。なお、本発明において粉末の粒径とは、光学顕微鏡を用いて写真撮影を実施し、その写真内に観察される粒子の最も長い部分の径を測定して平均した値をいう。

【0053】本願第2の発明は、原料粉末を圧力300 ~ 1200 MPa で圧縮する段階と、前記圧力で加圧した状態で、25℃から昇温速度5 ~ 40℃/min で550 ~ 800℃の保持温度まで温度上昇させる段階と、前記保持温度で0.01 ~ 10 min 保持し、前記原料粉末を焼結させる段階とを含む、請求項1 ~ 7のいずれか1項に記載のバルク交換スプリング磁石の製造方法である。

【0054】原料粉末を圧縮する段階の温度は特に限られるものではないが、作業の容易さ、コストの観点から作業環境の温度下で圧縮することが好ましい。また、作業環境としては、原料粉末が酸化により劣化することを防ぐため、湿度などの環境に配慮することが好ましい。

【0055】本発明に係るバルク化された交換スプリング磁石の緻密化プロセスとしては、型に充填された粉末を圧縮下で加熱することが有効である。これを実現するためには、ホットプレスや放電プラズマ焼結などの適用が可能である。特に、放電プラズマ焼結は昇温速度の制御が容易であり、正確な温度プロファイルを実現しやすいので好ましい。また、型材に関しての制限はなく所望の型材を適宜使用できる。圧縮下での加熱処理の際のプロセス条件としては、緻密化を促進して磁石性能を向上させ、原料粉末の理論密度の95%程度以上を容易に得るために、圧縮圧力は300 MPa 以上が好ましい。圧縮力の増加により緻密化は促進されるが、生産性を考慮すると圧縮圧力は1200 MPa 以下であることが適当である。

【0056】また、昇温速度は5 ~ 40℃/min が適当である。この範囲とすることで原料粉末間のホウ素原子及び酸素原子の凝集部を増加させることが可能であ

り、その結果、緻密化が向上する。また、試料内の温度分布をほぼ均一なものとすることができ、均一なバルク体を得られる。

【0057】さらに、保持温度及び保持時間を適切な範囲とすることで良好な磁気特性を得ることができる。これらの条件は詳細な検討の結果、保持温度は550 ~ 800℃、保持時間は0.01 ~ 10分が適切である。この範囲とすることでハード相とソフト相の結晶粒成長が抑制されて磁石特性の向上がもたらされ、焼結体の密度も向上する。

【0058】なお、圧縮圧力は500 ~ 1200 MPa、昇温速度は10 ~ 25℃/min、保持温度は650 ~ 700℃、保持時間は3分以下であることがそれぞれ好ましく、磁石特性をさらに向上させることができる。

【0059】原料粉末を作製する方法として液体急冷法を用いる場合は、急冷の際のロール周速度の影響が大きい。このとき、アモルファス含有量の確保、および生産性を考慮するとロール周速度10 ~ 60 m/sec で作製した急冷薄帯であることが好ましい。さらにはアモルファス中に微細な結晶質が混在すると磁石特性の向上が顕著であり、この効果を得るためにロール周速度は15 ~ 35 m/sec であることがより好ましい。

【0060】その中で、原料粉末を焼結する段階の圧力は $1 \times 10^{-4}$  ~ 9.5 Pa であることが好ましく、 $2 \times 10^{-4}$  ~ 3 Pa であることがより好ましい。この範囲で加圧することによって、磁石特性を劣化させずに緻密化が可能である。すなわち、必要量の酸素が供給されてバルク体の緻密化及び粒子間の結晶成長抑制効果が向上し、また原料粉末粒子間のみに酸素原子が供給されることで磁石粉末内部にまで酸素原子が拡散するのを抑え、磁石粉末自体の酸化を抑制して磁石特性が向上する。

【0061】以上のような種々の適切な条件が存在するものの、原料粉末の粒子間に存在するホウ素原子及び酸素原子の凝集部の存在により、従来の焼結プロセスに比べて低温かつ短時間のプロセスによって、交換スプリング磁石の磁気特性を損なうことなく、原料粉末の理論密度近くまで密度を向上させることが可能となった。

【0062】本願第3の発明は、前記記載のバルク交換スプリング磁石を用いてなるモータ、磁界センサ、回転センサ、加速度センサ、またはトルクセンサである。本発明に係るバルク交換スプリング磁石は、従来のボンド磁石とした交換スプリング磁石では得られなかった高性能な磁石が実現できるため、この磁石をモータ、磁界センサ、回転センサ、加速度センサ、トルクセンサ等に応用した場合、製品の小型軽量化を促進することができ、例えば、自動車用部品に適用した場合には飛躍的な燃費の向上が可能となる。

【0063】本発明に係る交換スプリング磁石の厚さは

特に制限されるものではなく、用途に応じて適宜調節することが好ましい。また、交換スプリング磁石の形状も、用途に応じて適宜調節することが好ましく、特に制限されるものではない。

【0064】一方、希土類磁石は酸化されやすいので、交換スプリング磁石の表面には保護膜を設けることもできる。保護膜の構成は特に限定されるものではなく、磁石特性に応じて好適な組成を選択し、十分な保護効果が得られるように厚さを決定すればよい。保護膜の具体例としては、金属膜、無機化合物膜、有機化合物膜が挙げられる。金属膜としては、Ti、Ta、Ca、Mo、Ni等が挙げられ、無機化合物膜としては、TiN、FeN、CrN等の遷移金属窒化物膜や、NiO、FeO等の遷移金属酸化物膜が挙げられ、有機化合物膜としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリウレタン、ポリエステル等からなる樹脂膜が挙げられる。保護膜の厚さは、保護膜を金属膜または無機化合物膜から構成する場合は、0.01~10 $\mu$ m程度とすることが好ましく、保護膜を有機化合物から構成する場合は、3~10 $\mu$ m程度であることが好ましい。

【0065】交換スプリング磁石の加工には、各種公知技術を適宜適用できる。すなわち、研削（外面研削、内面研削、平面研削、成型研削）、切断（外周切断、内周切断）、ラッピング、面取りなどの加工を実施できる。加工用具としては、ダイヤモンド、GC砥石、外内周切断機、外内周研削機、平面研削機、NC旋盤、フライス盤、マシニングセンターなどが用いることができる。

【0066】

【実施例】以下、本発明の具体的実施例を示し、本発明をさらに詳細に説明する。

【0067】<実施例1>図1は、Nd<sub>x</sub>Fe<sub>100-x-y</sub>B<sub>y</sub>組成において、以下の製造条件で得られたバルク磁石のx及びyの変化に対する磁石特性（最大エネルギー積）の相対値を示している。

- ・組成：Nd<sub>x</sub>Fe<sub>100-x-y</sub>B<sub>y</sub>
- ・原料粉末作製条件：液体急冷法、ロール周速度=20 m/sec
- ・原料粉末粒径：100 $\mu$ m
- ・焼結条件：加圧力=800MPa、昇温速度20℃/min、保持温度675℃、保持時間5min、焼成時雰囲気圧力=2.6 $\times$ 10<sup>-4</sup>Pa

図1から明らかなように、x=4~11、y=3~8において磁石の最大エネルギー積が向上し、x=7.5~10.5、y=5.5~7.5であるときに効果が顕著なことが分かる。また、一部をPr又はDyで置換したもの、Feの一部をCoで置換したもの、FeまたはCoの一部として少量の元素を添加（V、Nb、Cr、Cu、Zn、およびTiからなる群より選択される1種類以上の元素が0.4~5.0原子%程度）したものにおいても、同様の組成範囲で磁石特性の向上を確認した。

【0068】<実施例2>図2は、Nd<sub>x</sub>Fe<sub>100-x-y</sub>B<sub>y</sub>、x=4~11、y=3~8組成のバルク磁石に関して、種々の作製条件で得られたバルク磁石の原料粒子間のB濃度とO濃度を原料粉末内部と比較して、磁気特性との関係を示しものである。図から明らかなようにB原子とO原子の濃度比がいずれも1.2以上の場合において磁石特性（最大エネルギー積）の向上が認められた。

【0069】<実施例3>図3は、Nd<sub>x</sub>Fe<sub>100-x-y</sub>B<sub>y</sub>、x=4~11、y=3~8組成のバルク磁石に関して、種々の作製条件で得られたバルク磁石の原料粒子間のB原子及びO原子が凝集した部位の厚さと磁気特性との関係を示しものである。図から明らかなようにBとO原子の凝集部の厚さが65nm以上において磁石特性（最大エネルギー積）が向上していた。

【0070】<実施例4>図4は、Nd<sub>9</sub>Dy<sub>1</sub>Fe<sub>77</sub>Co<sub>5</sub>Nb<sub>2</sub>B<sub>6</sub>組成のバルク磁石に関して、原料粉末粒径と磁石特性（最大エネルギー積）の関係を示したものである。バルク磁石の作製条件は下記である。

- ・組成：Nd<sub>9</sub>Dy<sub>1</sub>Fe<sub>77</sub>Co<sub>5</sub>Nb<sub>2</sub>B<sub>6</sub>
- ・原料粉末作製条件：液体急冷法、ロール周速度=30 m/sec
- ・焼結条件：加圧力=1000MPa、昇温速度24℃/min、保持温度650℃、保持時間3min、雰囲気圧力=2.6 $\times$ 10<sup>-4</sup>Pa

図4から分かるように、原料粉末粒径20~500 $\mu$ mにおいて磁石特性が向上し、80~200 $\mu$ mであるとき、より磁石特性が向上した。

【0071】<実施例5>図5は、Nd<sub>7</sub>Dy<sub>1</sub>Fe<sub>74</sub>Co<sub>5</sub>Cr<sub>5</sub>B<sub>8</sub>組成のバルク磁石に関して、焼結時の加圧力と磁石特性（最大エネルギー積）の関係を示したものである。バルク磁石の作製条件は下記である。

- ・組成：Nd<sub>7</sub>Dy<sub>1</sub>Fe<sub>74</sub>Co<sub>5</sub>Cr<sub>5</sub>B<sub>8</sub>
- ・原料粉末作製条件：液体急冷法、ロール周速度=15 m/sec
- ・焼結条件：昇温速度30℃/min、保持温度675℃、保持時間5min、雰囲気圧力=2.6 $\times$ 10<sup>-4</sup>Pa

図5から分かるように、加圧力300~1200MPaにおいて磁石特性が向上し、500~1200MPaであるとき、より磁石特性が向上した。

【0072】<実施例6>図6は、Nd<sub>4</sub>Tb<sub>1</sub>Fe<sub>81</sub>Co<sub>7</sub>Cu<sub>3</sub>B<sub>4</sub>組成のバルク磁石に関して、焼結時の昇温速度と磁石特性（最大エネルギー積）の関係を示したものである。バルク磁石の作製条件は下記である。

- ・組成：Nd<sub>4</sub>Tb<sub>1</sub>Fe<sub>81</sub>Co<sub>7</sub>Cu<sub>3</sub>B<sub>4</sub>
- ・原料粉末作製条件：液体急冷法、ロール周速度=50 m/sec
- ・焼結条件：加圧力=500MPa、保持温度640℃、保持時間8min、雰囲気圧力=2.6 $\times$ 10<sup>-4</sup>Pa

図から分かるように、昇温速度が $5\sim 40^{\circ}\text{C}/\text{min}$ において磁石特性が向上し、 $10\sim 25^{\circ}\text{C}/\text{min}$ であるとき、より磁石特性が向上した。

【0073】<実施例7>図7は、 $\text{Nd}_{10}\text{Fe}_{75}\text{Co}_8\text{V}_1\text{B}_6$ 組成のバルク磁石に関して、焼結時の保持温度と磁石特性（最大エネルギー積）の関係を示したものである。バルク磁石の作製条件は下記である。

- ・組成： $\text{Nd}_{10}\text{Fe}_{75}\text{Co}_8\text{V}_1\text{B}_6$
- ・原料粉末作製条件：液体急冷法、ロール周速度= $15\text{ m/sec}$
- ・焼結条件：加圧力= $1000\text{ MPa}$ 、昇温速度が $22^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 、保持時間 $0\text{ min}$ 、雰囲気圧力= $2.6\times 10^{-4}\text{ Pa}$

図7から分かるように、保持温度が $550\sim 800^{\circ}\text{C}$ において磁石特性が向上し、 $650\sim 700^{\circ}\text{C}$ であるとき、より向上した。

【0074】<実施例8>図8は、 $\text{Nd}_8\text{Dy}_1\text{Fe}_{75}\text{Co}_4\text{V}_2\text{B}_7$ 組成のバルク磁石に関して、焼結時の保持温度と磁石特性（最大エネルギー積）の関係を示したものである。バルク磁石の作製条件は下記である。

- ・組成： $\text{Nd}_8\text{Dy}_1\text{Fe}_{75}\text{Co}_4\text{V}_2\text{B}_7$
- ・原料粉末作製条件：液体急冷法、ロール周速度= $20\text{ m/sec}$
- ・焼結条件：加圧力= $300\text{ MPa}$ 、昇温速度が $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 、保持温度が $700^{\circ}\text{C}$ 、雰囲気圧力= $2.6\times 10^{-4}\text{ Pa}$

図8から分かるように、保持時間は $0\sim 10\text{ min}$ において磁石特性が向上し、 $0\sim 3\text{ min}$ であるとき、より向上した。

【0075】<実施例9>図9は、 $\text{Nd}_8\text{Tb}_2\text{Fe}_{75}\text{Co}_5\text{Nb}_2\text{B}_8$ 組成のバルク磁石に関して、焼結時の保持温度と磁石特性（最大エネルギー積）の関係を示したものである。バルク磁石の作製条件は下記である。

- ・組成： $\text{Nd}_8\text{Tb}_2\text{Fe}_{75}\text{Co}_5\text{Nb}_2\text{B}_8$
- ・原料粉末作製条件：液体急冷法
- ・焼結条件：加圧力= $1000\text{ MPa}$ 、昇温速度が $25^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 、保持時間 $2\text{ min}$ 、保持温度が $680^{\circ}\text{C}$ 、雰囲気圧力= $2.6\times 10^{-4}\text{ Pa}$

図9から分かるように、ロール周速度は $10\sim 60\text{ m/sec}$ において磁石特性が向上し、 $15\sim 35\text{ m/sec}$ であるとき、より向上した。

【0076】<実施例10>図10は、 $\text{Nd}_{10}\text{Fe}_{75}\text{Co}_8\text{V}_1\text{B}_6$ 組成のバルク磁石に関して、焼結時の保持温度と磁石特性（最大エネルギー積）の関係を示したものである。バルク磁石の作製条件は下記である。

- ・組成： $\text{Nd}_8\text{Tb}_2\text{Fe}_{75}\text{Co}_5\text{Nb}_2\text{B}_8$
- ・原料粉末作製条件：液体急冷法、ロール周速度= $20$

$\text{m/sec}$

・焼結条件：加圧力= $1000\text{ MPa}$ 、昇温速度が $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 、保持時間 $0\text{ min}$ 、保持温度が $650^{\circ}\text{C}$   
図10から分かるように、焼結時の雰囲気圧力は $1\times 10^{-4}\sim 9.5\text{ Pa}$ において磁石特性が向上し、 $2\times 10^{-4}\sim 3\text{ Pa}$ であるとき、より向上した。

【0077】<実施例11>図11は、バルク磁石を電気自動車又はハイブリッド電気自動車の駆動用モータに応用した例である。従来のボンド磁石を用いたモータとの比較実験を行ったところ、最大トルクが1.4倍に増加した。

【図面の簡単な説明】

【図1】  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_y$ 組成において、以下の製造条件で得られたバルク磁石の $x$ 及び $y$ の変化に対する磁石性能の相対値を示す図である。

【図2】  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_y$ 、 $x=4\sim 11$ 、 $y=3\sim 8$ 組成のバルク磁石に関して、バルク磁石の原料粒子間のB濃度とO濃度を原料粉末内部と比較して磁気特性との関係を示す図である。

【図3】  $\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_y$ 、 $x=4\sim 11$ 、 $y=3\sim 8$ 組成のバルク磁石に関して、バルク磁石の原料粒子間の高B及びO濃度部の厚さと磁気特性との関係を示す図である。

【図4】  $\text{Nd}_8\text{Dy}_1\text{Fe}_{77}\text{Co}_5\text{Nb}_2\text{B}_8$ 組成のバルク磁石に関して、原料粉末粒径と磁石特性の関係を示す図である。

【図5】  $\text{Nd}_7\text{Dy}_1\text{Fe}_{74}\text{Co}_5\text{Cr}_5\text{B}_8$ 組成のバルク磁石に関して、焼結時の加圧力と磁石特性の関係を示す図である。

【図6】  $\text{Nd}_4\text{Tb}_1\text{Fe}_{81}\text{Co}_7\text{Cu}_3\text{B}_4$ 組成のバルク磁石に関して、焼結時の昇温速度と磁石特性の関係を示す図である。

【図7】  $\text{Nd}_{10}\text{Fe}_{75}\text{Co}_8\text{V}_1\text{B}_6$ 組成のバルク磁石に関して、焼結時の保持温度と磁石特性の関係を示す図である。

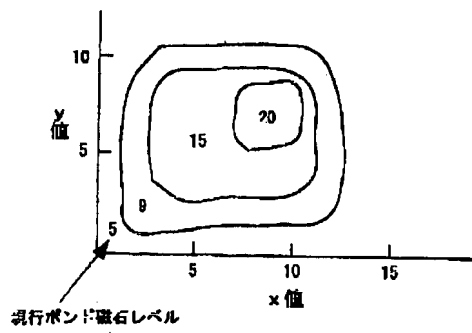
【図8】  $\text{Nd}_8\text{Dy}_1\text{Fe}_{75}\text{Co}_4\text{V}_2\text{B}_7$ 組成のバルク磁石に関して、焼結時の保持温度と磁石特性の関係を示す図である。

【図9】  $\text{Nd}_8\text{Tb}_2\text{Fe}_{75}\text{Co}_5\text{Nb}_2\text{B}_8$ 組成のバルク磁石に関して、焼結時の保持温度と磁石特性の関係を示す図である。

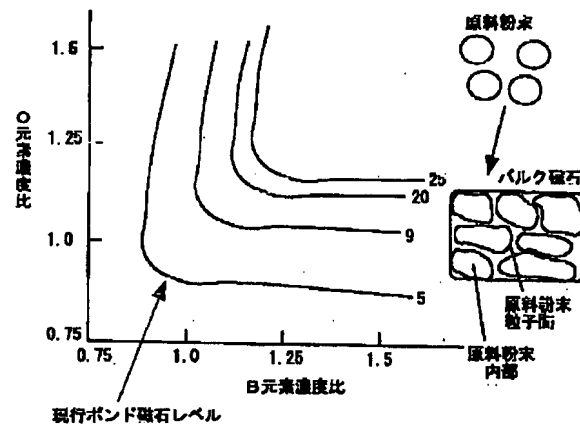
【図10】  $\text{Nd}_{10}\text{Fe}_{75}\text{Co}_8\text{V}_1\text{B}_6$ 組成のバルク磁石に関して、焼結時の保持温度と磁石特性の関係を示す図である。

【図11】 バルク磁石を電気自動車又はハイブリッド電気自動車の駆動用モータに応用した例を示す図である。

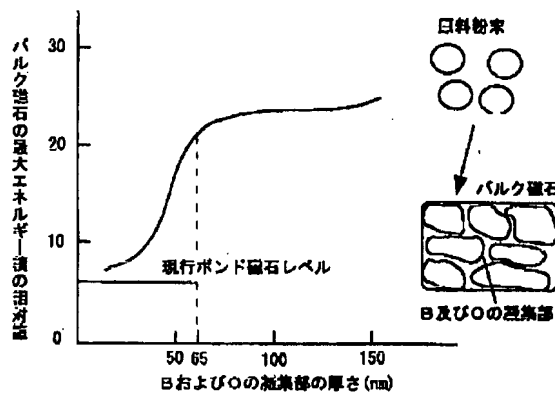
【図1】



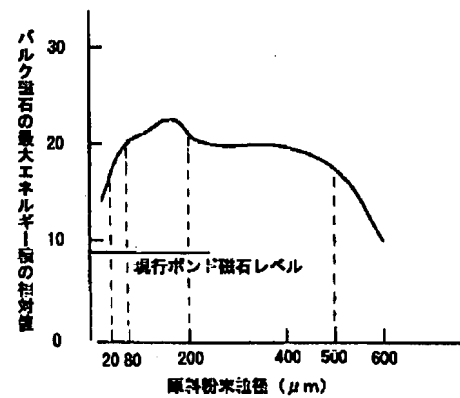
【図2】



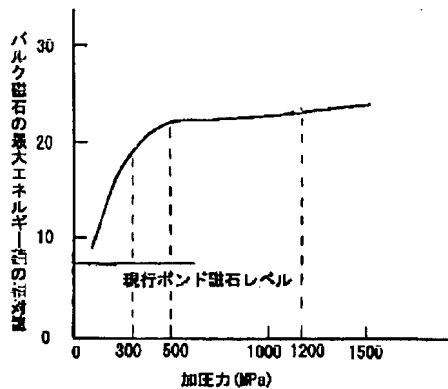
【図3】



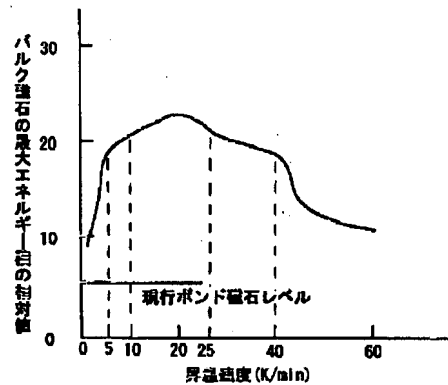
【図4】



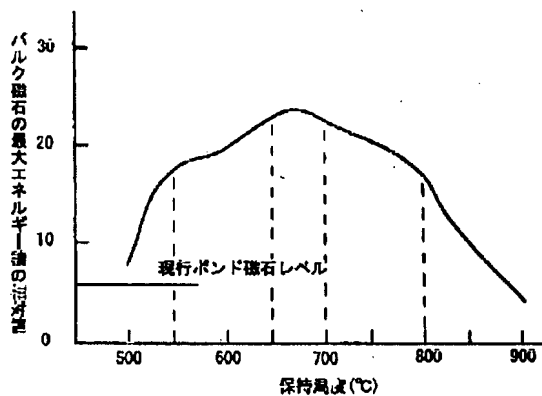
【図5】



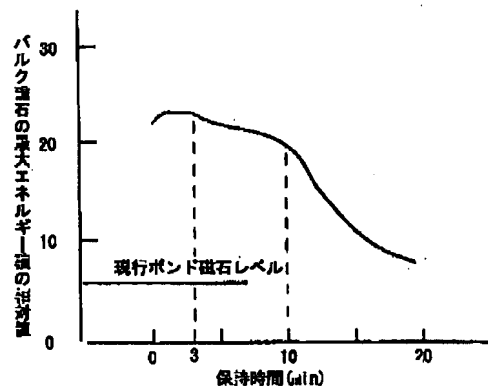
【図6】



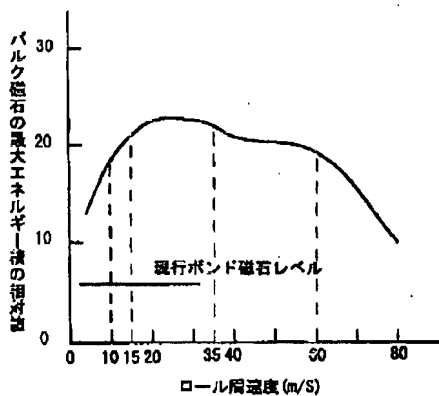
【図7】



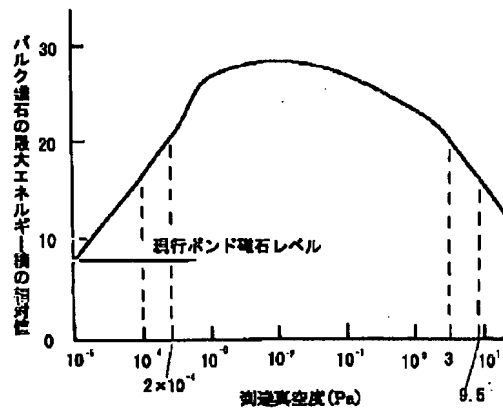
【図8】



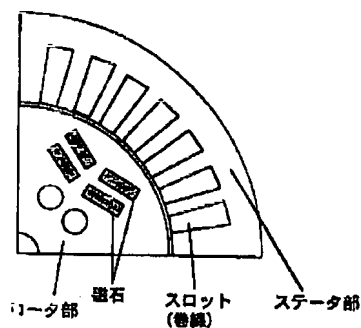
【図9】



【図10】



【図11】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

C 22 C 38/00

G 01 L 3/10

G 01 P 3/44

識別記号

3 0 3

F I

C 22 C 38/00

G 01 L 3/10

G 01 P 3/44

3 0 3 D

Z

Z

(参考)



15/105  
G O 1 R 33/038  
H O 1 F 1/053  
41/02

G O 1 R 33/038  
H O 1 F 41/02 G  
G O 1 P 15/08 C  
H O 1 F 1/04 H

( 72 ) 発明者 島田 宗勝  
神奈川県横浜市神奈川区宝町 2 番地 日産  
自動車株式会社内  
( 72 ) 発明者 杉山 龍男  
神奈川県横浜市神奈川区宝町 2 番地 日産  
自動車株式会社内

F ターム ( 参考 ) 2G017 AA01 AD21  
4K017 AA04 BA06 BB12 BB13 ED01  
4K018 AA27 BA18 BB04 DA22 KA45  
5E040 AA04 AA19 BD01 CA01 HB03  
HB05 NN01 NN06 NN17 NN18  
5E062 CD04 CE04 CG01